

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the Application of:

OYAMA, et al.

Application No.: 10/721,783

Filed: November 26, 2003

For: POLARIZING ELECTRODE FOR ELECTRIC DOUBLE LAYER CAPACITOR
AND ELECTRIC DOUBLE LAYER CAPACITOR THEREWITH

Group Art Unit: 2838

Examiner: Unknown

Attorney Dkt. No.: 107439-00100

CLAIM FOR PRIORITY

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450

April 29, 2004

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign applications filed in the following foreign country is hereby requested for the above-identified patent application and the priority provided in 35 U.S.C. §119 is hereby claimed:

2002-349170 filed on November 29, 2002
2002-349172 filed on November 29, 2002
2003-369379 filed on October 29, 2003
2003-369381 filed on October 29, 2003

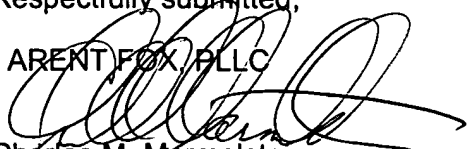
In support of this claim, certified copies of said original foreign applications are filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 U.S.C. §119 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of these documents.

Please charge any fee deficiency or credit any overpayment with respect to this paper to Deposit Account No. 01-2300.

Respectfully submitted,

ARENTH FOX, PLLC


Charles M. Marmelstein
Registration No. 25,895

1050 Connecticut Avenue, N.W.,
Suite 400
Washington, D.C. 20036-5339
Tel: (202) 857-6000
Fax: (202) 638-4810
CMM:mso

Enclosure: Priority Documents (4)

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 2 年 1 1 月 2 9 日
Date of Application:

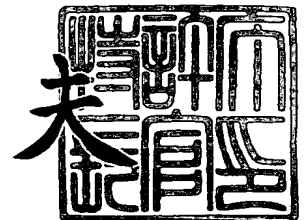
出 願 番 号 特 願 2 0 0 2 - 3 4 9 1 7 0
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 2 - 3 4 9 1 7 0]

出 願 人
Applicant(s): 本田技研工業株式会社
 大同メタル工業株式会社
 クラレケミカル株式会社

2 0 0 3 年 1 1 月 2 7 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 H102346701

【提出日】 平成14年11月29日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01G 9/058
H01G 9/016

【発明の名称】 電気二重層コンデンサ用分極性電極およびこれを用いた
電気二重層コンデンサ

【請求項の数】 3

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研
究所内

【氏名】 小山 茂樹

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研
究所内

【氏名】 岩井田 学

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研
究所内

【氏名】 村上 顕一

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県犬山市大字前原字天道新田 大同メタル工業株式
会社内

【氏名】 尾崎 幸樹

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県犬山市大字前原字天道新田 大同メタル工業株式
会社内

【氏名】 筒井 正典

【発明者】

【住所又は居所】 岡山県備前市鶴海 4 3 4 2 クラレケミカル株式会社内

【氏名】 大塚 清人

【特許出願人】

【識別番号】 000005326

【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 591001282

【氏名又は名称】 大同メタル工業株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 390001177

【氏名又は名称】 クラレケミカル株式会社

【代理人】

【識別番号】 100064908

【弁理士】

【氏名又は名称】 志賀 正武

【選任した代理人】

【識別番号】 100108578

【弁理士】

【氏名又は名称】 高橋 詔男

【選任した代理人】

【識別番号】 100101465

【弁理士】

【氏名又は名称】 青山 正和

【選任した代理人】

【識別番号】 100094400

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴木 三義

【選任した代理人】

【識別番号】 100107836

【弁理士】

【氏名又は名称】 西 和哉

【選任した代理人】

【識別番号】 100108453

【弁理士】

【氏名又は名称】 村山 靖彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008707

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9705358

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電気二重層コンデンサ用分極性電極およびこれを用いた電気二重層コンデンサ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 難黒鉛性原料を水蒸気で賦活してなる活性炭からなり、前記活性炭は、レーザー回折法により観測された粒度分布の中心粒径が $4\ \mu\text{m}$ 以上 $8\ \mu\text{m}$ 以下、かつ、前記粒度分布において前記中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有することを特徴とする電気二重層コンデンサ用分極性電極。

【請求項 2】 前記活性炭は、累積百分率における $2\ \mu\text{m}$ 以下の粒子が 10 % 以上であることを特徴とする請求項 1 記載の電気二重層コンデンサ用分極性電極。

【請求項 3】 集電体と分極性電極からなる電極体、セパレータおよび電解液で構成された電気二重層コンデンサにおいて、

前記分極性電極は、難黒鉛性原料を水蒸気で賦活してなる活性炭からなり、前記活性炭は、レーザー回折法により観測された粒度分布の中心粒径が $4\ \mu\text{m}$ 以上 $8\ \mu\text{m}$ 以下、かつ、前記粒度分布において前記中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有することを特徴とする電気二重層コンデンサ。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、活性炭からなる電気二重層コンデンサ用分極性電極と、この分極性電極を用いた電気二重層コンデンサに関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

電気二重層コンデンサ (Electric Double Layer Condenser) は、分極性電極と電解液との界面に生じる電気二重層に蓄積される電気エネルギーを利用したものである。

【0 0 0 3】

このような電気二重層コンデンサは、ファラッド級の大容量を有し、充放電サイクル特性にも優れることから、電気機器のバックアップ電源、車載バッテリーなどの用途に使用されている。

【0004】

例えば、図8に示すように、電気二重層コンデンサ1は、その内部に2つの分極性電極、すなわち、第一電極2と第二電極3を備えた構造を有している。これらの第一電極2と第二電極3は、セパレータ4により分離されている。

【0005】

第一電極2とその外側に配される第一集電体（以下、キャップとも呼称する）5は、一方の電極体7を構成し陽極として作用する。これに対して、第二電極3とその外側に配される第二集電体（以下、ケースとも呼称する）6は、他方の電極体8を構成し陰極として作用するよう構成されている。このような電気二重層コンデンサ1を構成する第一電極2と第二電極3には、微細な細孔を有する活性炭が好適に用いられる（特許文献1参照）。

【0006】

図9に示すように、電気二重層コンデンサを構成する活性炭からなる2つの分極性電極11、12には、溶媒と電解質とからなる電解液15が含浸されており、電解液15中で溶媒和している電解質イオン16、17が、2つの分極性電極11、12をなす活性炭の細孔18、19中に吸着集合することにより、一方の分極性電極11と電極体13は陽極を成し、他方の分極性電極12と電極体14は陰極を構成している。

【0007】

上記2つの電極をなす活性炭は、溶媒や電解質イオンが電気化学的に作用するための場を提供するものであると考えることができる。したがって、活性炭の物性や微細構造は、電気二重層コンデンサの性能を大きく左右する因子の一つである。

【0008】

また、上述した電気二重層コンデンサの他の一例としては、シート状に成形した電極体を、導電性を有する箔状の金属体（以下、導電性金属箔と呼称する）に

導電性を有する接着剤を用いて貼り付け一体構造とした電極体を捲回してなるコンデンサが知られている。その際、導電性金属箔としては、例えばアルミニウム(A1)などの金属からなる箔を未処理あるいはその表面にエッチング処理を施したものが好適に用いられる。

【0009】

ところで、自動車用を想定した高出力コンデンサ(単セルあたり250W級)用の電極に求められる特性の一つとしては、大電流の取り出しを可能にする低内部抵抗かつ十分な容量が挙げられる。

【0010】

コンデンサの大容量化を図る手法としては、電極重量あたりの容量(F/g)を向上させる方法が挙げられるが、自動車などへの搭載を前提とし、コンデンサモジュールとしての容積が限られている場合には、電極重量あたりの容量(F/g)ではなく、電極容積あたりの容量(F/cc)を向上させる必要がある。換言すると、この電極容積あたりの容量(F/cc)を向上させるということは、電極の成形密度の向上が求められることを意味する。

【0011】

一般に、電極の成形密度の向上を図るためには、重量あたりの容量を落とすことなく活性炭自身の密度を向上させる手法、あるいは電極の成形時に最密な充填構造を造る手法などが広く知られている。

【0012】

前者の手法すなわち活性炭自身の高密度化を図る手法としては、例えば活性炭原料として易黒鉛化原料を用い、不活性雰囲気中において1000℃以下の温度で炭化し得られた炭素原料などをアルカリ金属などの水酸化物で薬品賦活して得られる活性炭などの使用が、特許文献1に開示されている。

【0013】

しかしながら、これらの薬品賦活を用いる製造プロセスは賦活時の制御が難しく、かつ賦活後に使用薬品などをコンデンサの動作に影響を及ぼさないレベルまで洗浄する工程が必要となるため、大量生産において、コストの面で課題が多い。

【 0 0 1 4 】

一方、安定的に生産される活性炭としては、上記の薬品賦活に代えて水蒸気などのガスを用いて賦活する活性炭が知られている。その際、炭素原料として難黒鉛化原料を不活性雰囲気中において 1 0 0 0 ℃前後の温度で炭化した原料が用いられる。この方法では、比較的賦活され易い難黒鉛化原料を用いることから、活性炭の細孔形成が過度に進み、その結果として活性炭自身の密度が低下しやすいという問題があった。

【 0 0 1 5 】

後者の手法すなわち電極の成形時に最密な充填構造を造る手法としては、電極シートを成形する際にロール圧延の荷重などを制御して電極シートを緻密化する方法（特許文献 2 参照）や、主成分である活性炭の粒度制御を行う方法（特許文献 3 参照）などが挙げられる。

【 0 0 1 6 】

しかしながら、上記何れかの方法で高密度化した電極は、成形されたシートにクラックや断裂などの著しい成形不良が発生したり、あるいはコンデンサ組み立て時の電解液含浸工程において電解液の浸透速度の低下や含浸不足が生じる恐れがあった。

【 0 0 1 7 】

また、上述した成形性や電極密度は、シート状に加工した後に初めて明確な評価が可能となる物性値であることから、事前に原料活性炭の良不良の判断を行うのは難しいという問題もあった。

【 0 0 1 8 】

【特許文献 1】

特開平 9 - 3 2 0 9 0 6 号公報

【特許文献 2】

特開 2 0 0 0 - 2 7 7 3 9 1 号公報

【特許文献 3】

特開 2 0 0 1 - 5 2 9 7 2 号公報

【 0 0 1 9 】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は上記事情に鑑み、良好な成形性を有すると共に、電極の高密度化や高容量化も図ることが可能な電気二重層コンデンサ用分極性電極およびこれを用いた電気二重層コンデンサを提供することを目的とする。

【0020】**【課題を解決するための手段】**

本発明は上記課題を解決するために、難黒鉛性原料を水蒸気で賦活してなる活性炭からなり、前記活性炭は、レーザー回折法により観測された粒度分布の中心粒径が $4\mu\text{m}$ 以上 $8\mu\text{m}$ 以下、かつ、前記粒度分布において前記中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有することを特徴とする電気二重層コンデンサ用分極性電極を提供する。

【0021】

難黒鉛性原料（例えば、実施形態のフェノール樹脂）を水蒸気で賦活してなる活性炭であれば、レーザー回折法（例えば、実施形態に詳述する島津製作所製のSALD-3000S装置を用いた測定法）により観測される粒度分布およびその中心粒径が異なるものが安定して得られる。

【0022】

活性炭の粒度分布の中心粒径が $4\mu\text{m}$ を下回る場合は、中心粒径が減少するにつれて電極シート強度は単調に低下する。一方、中心粒径が $8\mu\text{m}$ を超える場合は、中心粒径が増加するにつれて電極シート強度は大幅に低下する。これに対して、粒度分布の中心粒径が $4\mu\text{m}$ 以上 $8\mu\text{m}$ 以下の活性炭であれば、 5Kg f/cm^2 前後の極めて高い電極シート強度を確保できるので好ましい。

【0023】

活性炭の粒度分布において、中心粒径よりも低粒度側に少なくともピークが観測されることを示せば、 5Kg f/cm^2 前後の極めて高い電極シート強度を確保でき、また、電極シートにクラックや断裂などの成形不良が発生しないので好ましい。また、粒度分布を上記のようにした活性炭であれば、 0.630g/cc を超える比較的高い電極シート密度も併せ持つことができる。

【0024】

また、本発明は、前記活性炭が、累積百分率における $2\ \mu\text{m}$ 以下の粒子が 1 0 % 以上であることを特徴とする電気二重層コンデンサ用分極性電極を提供する。

【0 0 2 5】

累積百分率における $2\ \mu\text{m}$ 以下の粒子が 1 0 % 以上である活性炭も、 $5\ \text{Kg f} / \text{cm}^2$ 前後の極めて高い電極シート強度を確保でき、電極シートにクラックや断裂などの成形不良が発生しないので好ましい。この活性炭は、 $0.630\ \text{g} / \text{cc}$ を超える比較的高い電極シート密度も併せ持つことができる。累積百分率における $2\ \mu\text{m}$ 以下の粒子が 1 0 % 未満の活性炭では、電極シート強度が低減傾向を示し、成形性が劣化すると共に、電極シート密度も低減傾向を示すことが確認された。

【0 0 2 6】

したがって、粒度分布の中心粒径が $4\ \mu\text{m}$ 以上 $8\ \mu\text{m}$ 以下であって、前記粒度分布において前記中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有し、累積百分率における $2\ \mu\text{m}$ 以下の粒子が 1 0 % 以上である活性炭を用いた電気二重層コンデンサ用分極性電極であれば、比較的高い電極シート強度と電極シート密度を併せ持つことから、良好な成形性を有すると共に、電極の高密度化や高容量化も図ることが可能となる。その結果、分極性電極を取り扱う際の作業安定性が向上するので製造コストの低減が図れる。また、高い電極シート密度は緻密度の高い分極性電極の製造に寄与する。

【0 0 2 7】

また、本発明は、集電体と分極性電極からなる電極体、セパレータおよび電解液で構成された電気二重層コンデンサにおいて、前記分極性電極は、難黒鉛性原料を水蒸気で賦活してなる活性炭からなり、前記活性炭は、レーザー回折法により観測された粒度分布の中心粒径が $4\ \mu\text{m}$ 以上 $8\ \mu\text{m}$ 以下、かつ、前記粒度分布において前記中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有することを特徴とする電気二重層コンデンサを提供する。

【0 0 2 8】

かかる構成によれば、電気二重層コンデンサの分極性電極をなす活性炭が、上述した範囲からなる粒度分布の中心粒径（ $4\ \mu\text{m}$ 以上 $8\ \mu\text{m}$ 以下）や粒度分布（

中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有する)を備えており、2 0 0 0 時間後においても 9 0 % 前後の容量維持率を保持できることから、長期使用時においても優れた信頼性を発揮できる電気二重層コンデンサの提供が可能となる。

【0 0 2 9】

【発明の実施の形態】

本発明に係る電気二重層コンデンサ用分極性電極を構成する活性炭は、難黒鉛性原料を水蒸気で賦活して形成される。

【0 0 3 0】

ここで、「難黒鉛性原料」という用語は、黒鉛化が困難な有機化合物からなる材料を包括的に呼称するために使用するものとする。黒鉛化が困難とは、3 0 0 0 °C 以上の焼成処理によっても黒鉛構造が形成され難いことを意味する。黒鉛構造の形成は、例えば、X 線回折パターンにおいて 2θ が 25° 付近に明白なピークを持つことにより確認することができる。

【0 0 3 1】

本発明に係る電気二重層コンデンサ用分極性電極を構成する活性炭は、好ましくは以下に述べるような手法に基づいた製造方法により得られる。

【0 0 3 2】

まず、本発明に係る活性炭を製造する際に用いる原料について説明する。本発明の活性炭の原料としては、黒鉛化が困難な難黒鉛性材料が好適である。黒鉛化の際に黒鉛化触媒を添加しても構わない。難黒鉛性材料をなす黒鉛化が困難な有機化合物としては、例えば、芳香族化合物であるフルフリルアルコール、ポリカーボネート、セルロース、フェノール樹脂などや、脂肪族化合物であるエポキシ樹脂、P V D F (ポリフッ化ビニリデン)、ポリビニルアルコール、ナイロン、ポリプロピレンなどが挙げられる。

【0 0 3 3】

このような原料を使用し、本発明に係る電気二重層コンデンサ用分極性電極の活性炭は、次の手順によって製造できる。ここでは、難黒鉛性材料としてフェノール樹脂を用い、黒鉛構造が生じる温度で熱処理した後、水蒸気で賦活処理を行

う方法について述べる。

【0034】

黒鉛構造が生じる温度で行う熱処理は、非酸化性雰囲気下、例えば窒素ガス（ N_2 ガス）気流下のような条件下で、通常は $400\sim1000^{\circ}C$ 、好ましくは $500\sim800^{\circ}C$ 、さらに好ましくは $500\sim700^{\circ}C$ の温度で行う。処理時間は、通常は24時間以下、好ましくは1～10時間、さらに好ましくは2～5時間とする。他の処理条件は、使用する原料および製造する電極用活性炭の種類などに応じて適宜定めることができる。

【0035】

水蒸気賦活は、通常の方法により行うことができる。好適な実施の形態では、水蒸気賦活は次のようにして行う。すなわち、純水を入れた洗気ビンを室温～ $100^{\circ}C$ 、好ましくは $80^{\circ}C$ に保ち、これに窒素ガスを流し、この水蒸気を含んだ窒素ガスで賦活を行う。具体的には、 $800\sim1000^{\circ}C$ 、好ましくは $900^{\circ}C$ までは窒素気流下で昇温し、所定温度（例えば、 $800^{\circ}C$ ）に到達した時点で、窒素／水蒸気の混合ガスを用いて5分～10時間賦活を行う。

【0036】

以上のようにして調製した活性炭を、ジェットミル、ボールミルなどの粉碎手法を用いて、24～300時間粉碎した後、この粉碎物を $330\ (45\ \mu m)$ メッシュの篩で分級することにより、所定の粒度分布を示す、本発明に係る電気二重層コンデンサ用分極性電極の活性炭を得ることができる。

【0037】

以上のようにして調製した活性炭に対し、レーザー回折法により観測された粒度分布の中心粒径が $4\ \mu m$ 以上 $8\ \mu m$ 以下、かつ、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有し、累積百分率における $2\ \mu m$ 以下粒子が10%以上の活性炭を得ることができる。

【0038】

また、得られた活性炭は、ベンゼン吸着量がベンゼンの重量あたり54%以上60%以下なるものであることを、JIS規格のK1474-1991で定める測定方法を用いて確認した。

ここで、ベンゼン吸着量とは、ベンゼン蒸気の活性炭への吸着を重量差により測定することにより得られるもので、賦活の進行度合いを表す指標である。

【 0 0 3 9 】

次いで、この活性炭を用いて、通常の方法により電気二重層コンデンサ用分極性電極を作製することができる。シート状からなる分極性電極を形成する方法としては、例えば以下の方法が挙げられる。

【 0 0 4 0 】

上述したフェノール樹脂から得られた活性炭、導電性フィラーとしての黒鉛粉末および結着剤としてのポリ四フッ化エチレンなどを所定の割合（例えば、重量比で 9 0 : 5 : 5）で混練した後、圧延により厚さ 1 5 0 μ m のシート状部材を形成し、次いで、このシート状部材を円形に打ち抜き、直径が 2 0 m m の分極性電極を形成する。

【 0 0 4 1 】

次いで、図 8 に示すように、導電性材料からなり陰極をなすケース 6 内に、二枚のシート状の分極性電極 2、3 でセパレータを挟んだ構造体を配し、電解液を注入した後、導電性材料からなり陽極をなすキャップ 5 を載せてから、絶縁性材料のパッキング 9 を介してケース 6 とキャップ 5 の端部同士をカシメて封止することによって電気二重層コンデンサ 1 を作製することができる。

【 0 0 4 2 】

活性炭の指標である中心粒径は、レーザー回折法（島津製作所製の S A L D - 3 0 0 0 S を用いた測定法）により得られた粒度分布から求めることができる。また、この粒度分布の頻度積算値から、粒径が 2 μ m 以下の活性炭の粒子の含有量を求めることができる。

【 0 0 4 3 】

コンデンサの性能の指標である電極シート強度は、例えば島津製作所製 E Z T e s t - 1 0 0 N を用いて、引っ張り強度を測定することにより求めることができる。また、電極シート密度は、例えばマイクロメータを用いて、見かけの密度を測定することにより求めることができる。

【 0 0 4 4 】

耐久後容量維持率は、4 5℃環境下で 2. 5 V 連続電圧印加試験を 2 0 0 0 時間行った後の静電容量を印加前の静電容量で除し、その値を百分率で表記した数値である。ここで、静電容量は、所定の電解液（例えば、テトラエチルメチルアンモニウムテトラフルオロボレーイトのプロピレンカーボネート溶液、濃度 1. 8 m o l / l）を用い、所定の電圧および電流（例えば、充電電圧 2. 5 V、充電電流 5 m A）で充放電を繰り返し、その放電エネルギーから求めることができる。

【 0 0 4 5 】

【実施例】

以下に実施例により本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【 0 0 4 6 】

（実施例 1）

本例に係る活性炭粉末は、以下の手順により作製した。

（1）粒径が 3 m m 程度となるように造粒したフェノール樹脂を、窒素気流中に 9 0 0℃で 2 時間保持することで炭化処理を行った。

【 0 0 4 7 】

（2）得られた原料炭素を窒素気流中で再度昇温し、8 0 0℃に到達した時点で 5 % 水蒸気と 5 % 二酸化炭素を含む窒素混合ガスを流通させて、9 0 0℃（以下、賦活温度と呼ぶ）で 2 時間（以下、賦活時間と呼ぶ）保持することで賦活処理を行った。

【 0 0 4 8 】

（3）得られた活性炭は放冷後、高純度アルミナボールを用いたボールミル粉碎機を用い、粉碎機の回転数を 1 5 r p m、粉碎処理を 1 5 0 時間（以下、粉碎時間と呼ぶ）行うことにより本例に係る活性炭粉末を得た。

【 0 0 4 9 】

作製した活性炭の中心粒径は、レーザー回折法（島津製作所製の A L D - 3 0 0 0 S を用いた測定法）により得た粒度分布から求めた。

また、作製した活性炭中における粒径が 2 μ m 以下の活性炭の粒子の含有量を

頻度積算値から求めた。

【0050】

この活性炭に重量比で結着材としてテフロン 6 J (登録商標、三井デュポンフルオロケミカル社製) を 5 %、デンカブラック (登録商標、電気化学工業社製) を 5 % 加え、圧粉成型により ϕ 20 mm、マイクロメータで測定する厚みが 150 μ m の分極性電極とした。また、この分極性電極を 150 °C で 4 時間真空乾燥した後の重量を測定し、電極密度とした。

電極強度は、この状態で島津製作所製 E Z T e s t - 100 N を用いて引っ張り強度を測定し、電極強度とした。

【0051】

表 1 に、実施例 1 で得られた活性炭の中心粒径、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークの数、粒径が 2 μ m 以下の粒子の含有量、分極性電極の電極密度、電極強度に関する各数値、および、電極シートの性状 (成形性) をまとめて示した。

【0052】

また、電解液は、1. 8 M (C₂H₅)₃CH₃BF₄ の P C 溶液を用い、充電電圧 2. 5 V、充電電流 5 mA で定電流一定電圧充電を 2 時間行い、その放電エネルギーから静電容量を求めた。また、耐久後容量維持率は、45 °C 環境下 2. 5 V の定電圧印加を 2000 時間した後の静電容量を電圧印加前の静電容量で除して計算し、その値を百分率で表した。

その結果、2000 時間後においても 92 % の容量維持率を示した。

【0053】

(実施例 2 ~ 6)

本例では、粉碎時間を 125 時間 (実施例 2)、100 時間 (実施例 3)、80 時間 (実施例 4)、60 時間 (実施例 5)、30 時間 (実施例 6)、とした以外は実施例 1 と同様の方法で活性炭を作製し、同様の方法で活性炭の中心粒径、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークの数、粒径が 2 μ m 以下の粒子の含有量、分極性電極の電極密度、電極強度に関する各数値、および、電極シートの性状 (成形性) を求めた。これらの数値も表 1 に示した。

実施例 2 で得られた活性炭を用いて作製した電極シートの 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 9 1 %、実施例 3 では 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 9 0 %、実施例 4 では 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 9 2 %、実施例 5 では 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 9 2 %、実施例 6 では 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 9 2 % であった。

【0 0 5 4】

【表 1】

実施例	中心粒径	2 μ m以下 粒子含有率	中心粒径以下の 粒度分布ピーク数	電極密度	電極強度	シート性状
No.	(μ m)	(重量%)		(g/cc)	(kgf/cm ²)	
1	4.2	15.3	3	0.670	5.0	良好
2	4.8	14.3	3	0.662	5.2	良好
3	5.2	12.5	2	0.658	5.1	良好
4	6.5	12.1	2	0.652	5.3	良好
5	7.1	11.3	1	0.644	5.1	良好
6	8.0	10.1	1	0.636	4.9	良好

【0 0 5 5】

また、図 1 に実施例 2 で得られた活性炭の粒度分布を示し、図 2 に実施例 4 で得られた活性炭の粒度分布を示し、図 3 に実施例 5 で得られた活性炭の粒度分布を示した。図 1 ～ 3 中の一点鎖線は、粒度分布における中心粒径を示す。

なお、実施例 1 ～ 6 で得られた活性炭のベンゼン吸着量を、上述した J I S 規格の K 1 4 7 4 - 1 9 9 1 で定める測定方法により求めたところ、ベンゼン吸着量がベンゼンの重量あたり 5 4 % 以上 6 0 % 以下であることが確認された。

【0 0 5 6】

(比較例 1)

本例では、粉碎機の回転数を 2 5 r p m、粉碎時間を 4 0 時間とした以外は実施例 1 と同様の方法で活性炭を作製し、同様の方法で活性炭の中心粒径、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークの数、粒径が 2 μ m 以下の粒子の含有量、分極性電極の電極密度、電極強度に関する各数値、および、電

極シートの性状（成形性）を求めた。これらの数値を表 2 に示した。

また、比較例 1 で得られた活性炭を用いて作製した電極シートの 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 8 3 % であった。

【0 0 5 7】

（比較例 2 ～ 5）

本例では、粉碎機の回転数を 2 5 r p m、粉碎時間を 4 5 時間（比較例 2）、粉碎機の回転数を 2 5 r p m、粉碎時間を 3 5 時間（比較例 3）、粉碎機の回転数を 3 5 r p m、粉碎時間を 3 0 時間（比較例 4）、粉碎機の回転数を 4 0 r p m、粉碎時間を 3 0 時間（比較例 5）、とした以外は比較例 1 と同様の方法で活性炭を作製し、同様の方法で活性炭の中心粒径、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークの数、粒径が $2 \mu m$ 以下の粒子の含有量、分極性電極の電極密度、電極強度に関する各数値、および、電極シートの性状（成形性）を求めた。これらの数値も表 2 に示した。

比較例 2 で得られた活性炭を用いて作製した電極シートの 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 8 6 %、比較例 3 では 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 8 5 %、比較例 4 では 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 8 4 %、比較例 5 では 2 0 0 0 時間後における容量維持率は 8 6 % であった。

【0 0 5 8】

【表 2】

比較例	中心粒径	2 μm 以下 粒子含有率	中心粒径以下の 粒度分布ピーク数	電極密度	電極強度	シート性状
No.	(μm)	(重量%)		(g/cc)	(Kgf/cm ²)	
1	6.3	5.3	0	0.623	3.8	クラック大
2	5.9	7.8	0	0.631	4.4	クラック大
3	6.2	6.9	0	0.630	3.9	クラック大
4	7.1	4.0	0	0.620	3.1	シート破断
5	6.8	3.3	0	0.619	3.0	シート破断

【0 0 5 9】

また、図 4 に比較例 1 で得られた活性炭の粒度分布を示した。図 4 中の一点鎖線は、粒度分布における中心粒径を示す。

なお、比較例 1 ～ 5 で得られた活性炭のベンゼン吸着量を、上述した J I S 規格の K 1 4 7 4 - 1 9 9 1 で定める測定方法により求めたところ、ベンゼン吸着量がベンゼンの重量あたり 5 4 % 未満あるいは 6 0 % を超えていることが確認された。

【 0 0 6 0 】

図 5 は、中心粒径または粒径が $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子の含有量と、電極シート密度との関係を示すグラフである。

図 5 (a) から、電極シート密度は、活性炭の中心粒径が増加するに伴い単調に減少する傾向を示すことが分かった。また、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークをもたない活性炭（比較例）の場合は、電極シート密度が低いことが分かった。

また、図 5 (b) から、電極シート密度は、活性炭中の粒径が $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子の含有量が増加するに伴い単調に増加する傾向を示すことが分かった。

【 0 0 6 1 】

図 6 は、中心粒径または粒径が $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子の含有量と、電極シート強度との関係を示すグラフである。

図 6 (a) から、粒度分布の中心粒径が $4 \mu\text{m}$ 以上 $8 \mu\text{m}$ 以下、かつ、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有する活性炭であれば、 $5 \text{ Kg f} / \text{cm}^2$ 前後の極めて高い電極シート強度を確保できることが分かった。粒度分布の中心粒径が $4 \mu\text{m}$ 以上 $8 \mu\text{m}$ 以下の範囲にあっても、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークをもたない活性炭の場合は、中心粒径が増加するに伴って電極シート強度は低下する傾向を示すことが分かった。

【 0 0 6 2 】

図 6 (b) より、累積百分率における $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子が 1 0 % 以上とした活性炭であれば、 $5 \text{ Kg f} / \text{cm}^2$ 前後の極めて高い電極シート強度を確保できることが分かる。累積百分率における $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子が 1 0 % より低い場合は、

電極シート強度が低減傾向を示すので芳しくない。

【0 0 6 3】

図5から明らかとなった0. 6 3 0 g / c cを超える比較的高い電極シート密度が得られる中心粒径が4 μ m以上8 μ m以下、かつ、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有し、累積百分率における2 μ m以下の粒子が1 0 %以上の範囲とした活性炭であれば、5 K g f / c m²前後の極めて高い電極シート強度も併せ持つことが可能であることが図6のグラフで確認できる。

【0 0 6 4】

図7は、実施例および比較例における活性炭の粒度分布測定の結果から、特に、実施例2と比較例4の粒度分布の累積百分率を求めたグラフであり、図7 (b) は図7 (a) の一部を拡大して示したものである。

図7から、実施例2で得られた活性炭は、累積百分率における2 μ m以下の粒子が1 0 %以上であり、比較例4で得られた活性炭は、累積百分率における2 μ m以下の粒子が1 0 %未満であることが確認された。

【0 0 6 5】

図5、図6および図7の結果より、中心粒径が4 μ m以上8 μ m以下、かつ、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有し、累積百分率における2 μ m以下の粒子が1 0 %以上とした活性炭を用いた電気二重層コンデンサ用分極性電極であれば、比較的高い電極シート強度と電極シート密度を併せ持つことが確認された。

【0 0 6 6】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明に係る電気二重層コンデンサ用分極性電極は、粒度分布の中心粒径が4 μ m以上8 μ m以下、かつ、粒度分布において中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有するものであって、累積百分率における2 μ m以下の粒子が1 0 %以上とした活性炭を用いて作製されるので、比較的高い電極シート強度と電極シート密度を併せ持つことが可能となり、これは分極性電極の良好な成形性をもたらす。

【0 0 6 7】

上述した分極性電極の良好な成形性は、分極性電極を取り扱う際の作業安定性が向上させることから製造コストの低減に貢献し、高い電極シート密度は緻密度の高い分極性電極の製造に寄与する。

【0 0 6 8】

また、本発明に係る電気二重層コンデンサは、上記構成とした分極性電極を用いたことにより、2 0 0 0 時間後の容量維持率が9 0 %前後の高い数値を有することが可能となる。

【0 0 6 9】

したがって、本発明によれば、低コスト化が図れると共に、高性能でかつ長期信頼性にも優れた電気二重層コンデンサ用分極性電極および電気二重層コンデンサを提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 実施例 2 で得られた活性炭の粒度分布を示すグラフである。

【図 2】 実施例 4 で得られた活性炭の粒度分布を示すグラフである。

【図 3】 実施例 5 で得られた活性炭の粒度分布を示すグラフである。

【図 4】 比較例 1 で得られた活性炭の粒度分布を示すグラフである。

【図 5】 中心粒径または粒径が $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子の含有量と、電極シート密度との関係を示すグラフである。

【図 6】 中心粒径または粒径が $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子の含有量と、電極シート強度との関係を示すグラフである。

【図 7】 実施例および比較例における活性炭の粒度分布測定の結果から、実施例 2 と比較例 4 の粒度分布の累積百分率を求めたグラフである。

【図 8】 電気二重層コンデンサの一例を示す図である。

【図 9】 電解液中のイオンが電極に吸着される状態を示す概念図である。

【符号の説明】

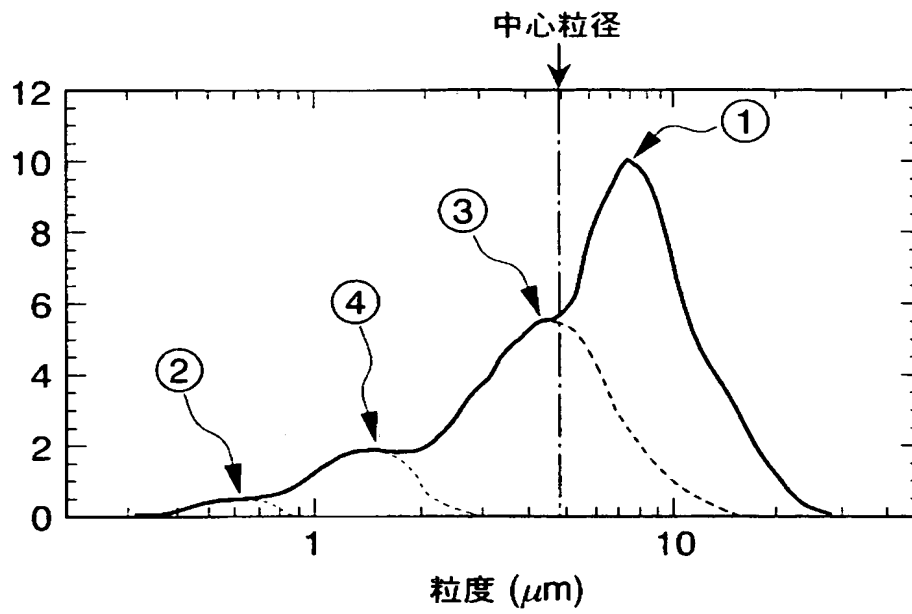
- 1 電気二重層コンデンサ、
- 2 第一電極（分極性電極）、
- 3 第二電極（分極性電極）、

- 4 セパレータ、
- 5 第一集電体（キャップ）、
- 6 第二集電体（ケース）、
- 7 電極体（陽極）、
- 8 電極体（陰極）、
- 11、12 分極性電極、
- 13、14 集電体、
- 15 電解液、
- 16、17 電解質イオン、
- 18、19 細孔。

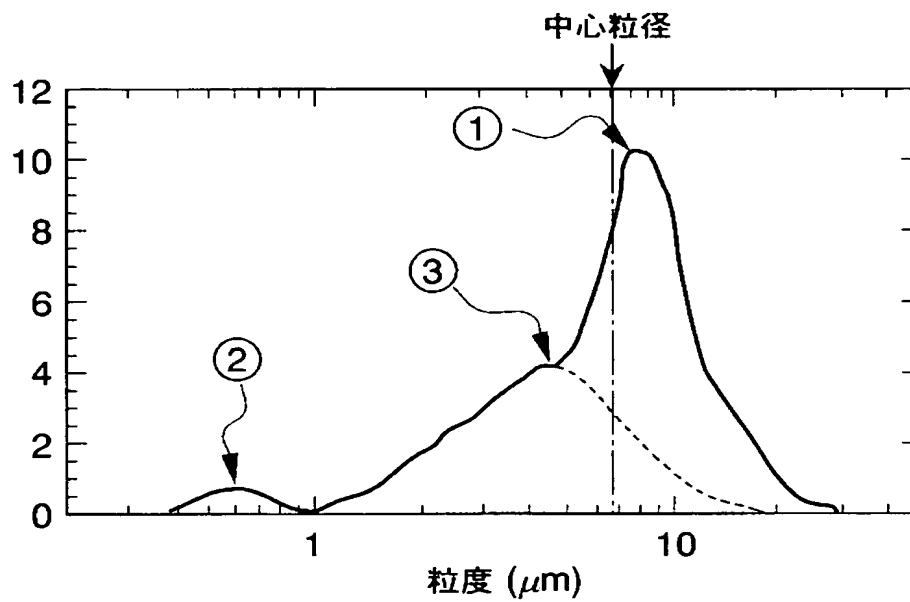
【書類名】

図面

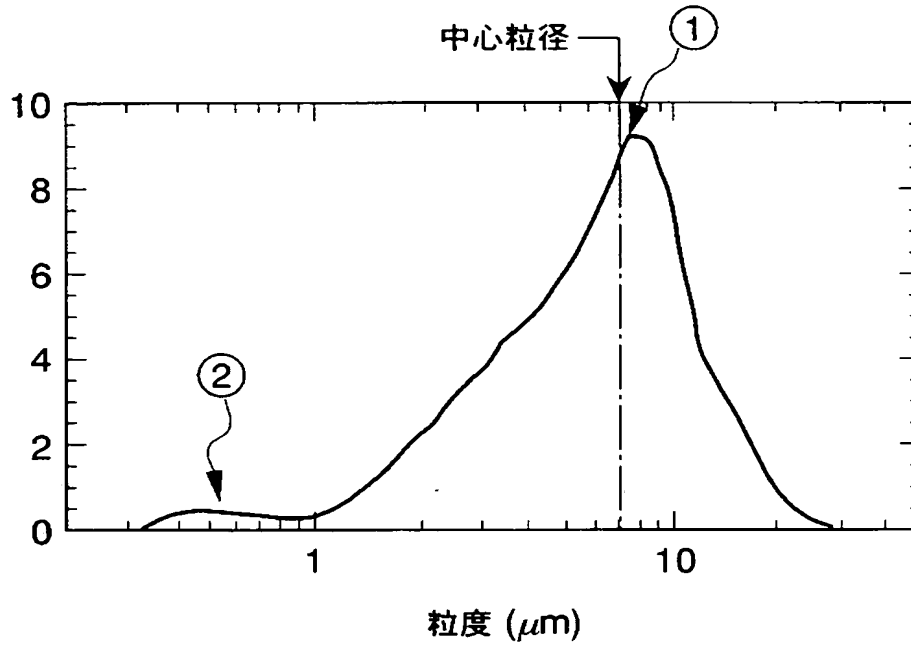
【図 1】



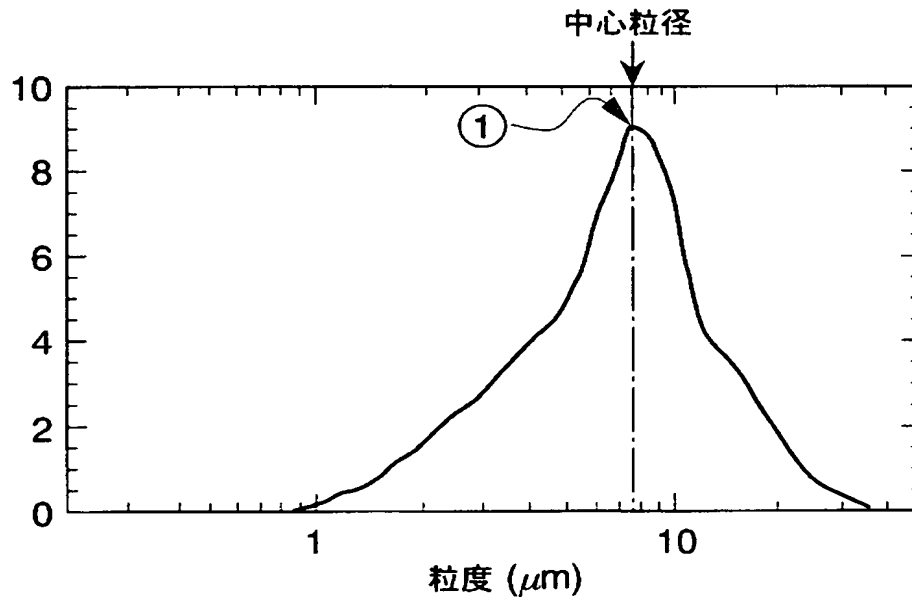
【図 2】



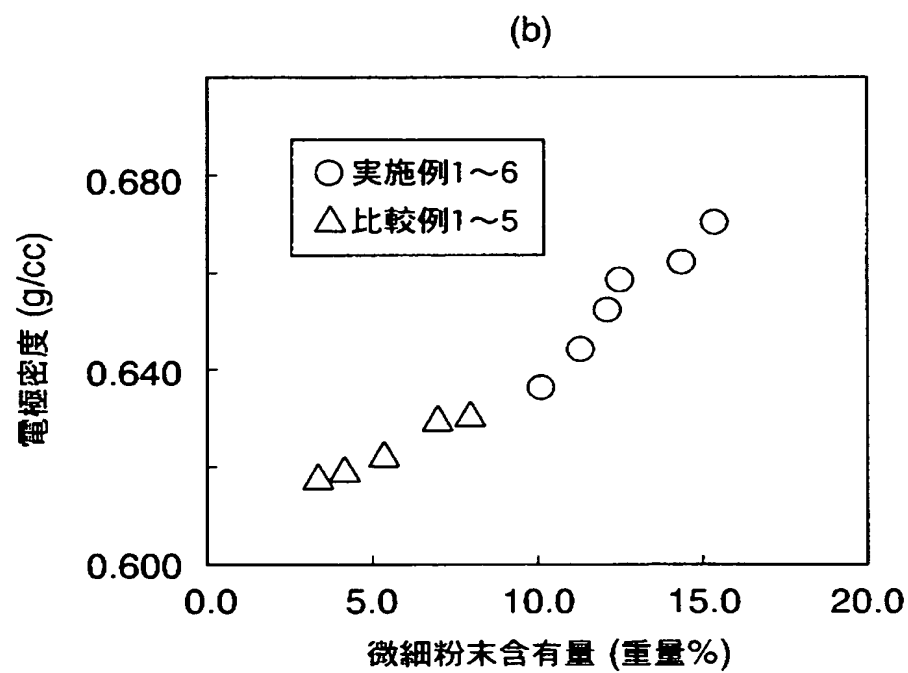
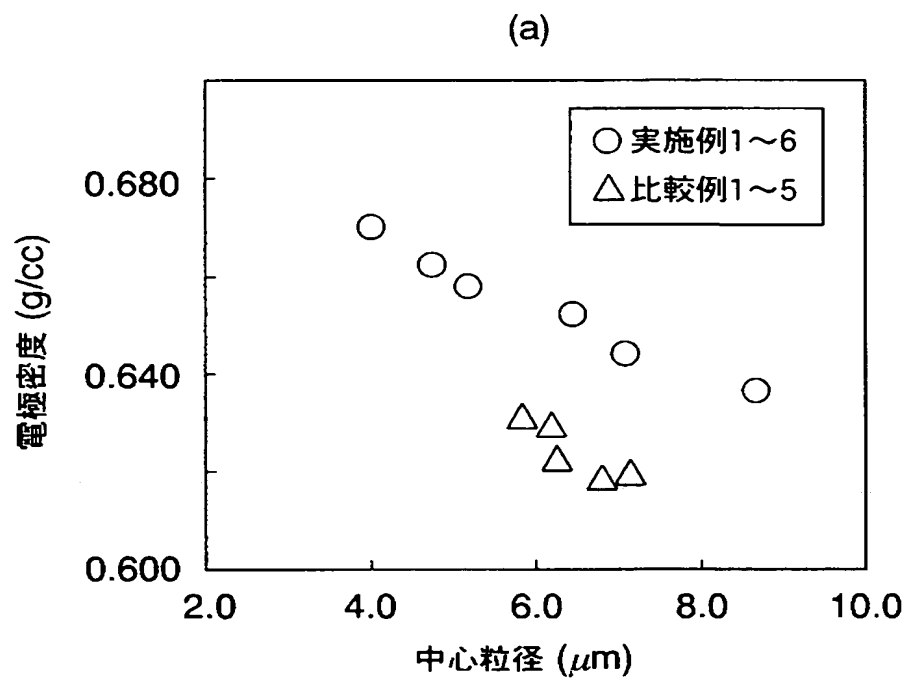
【図 3】



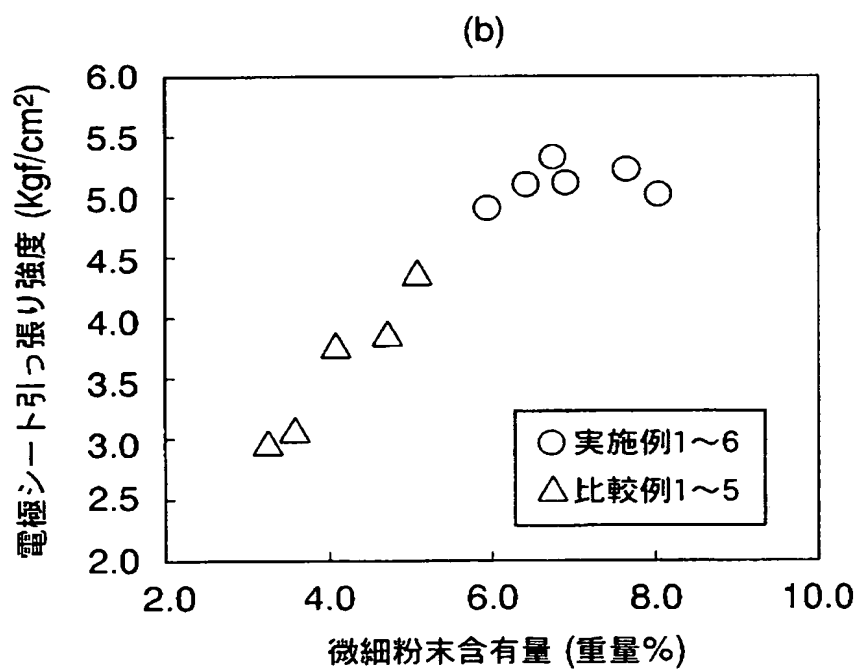
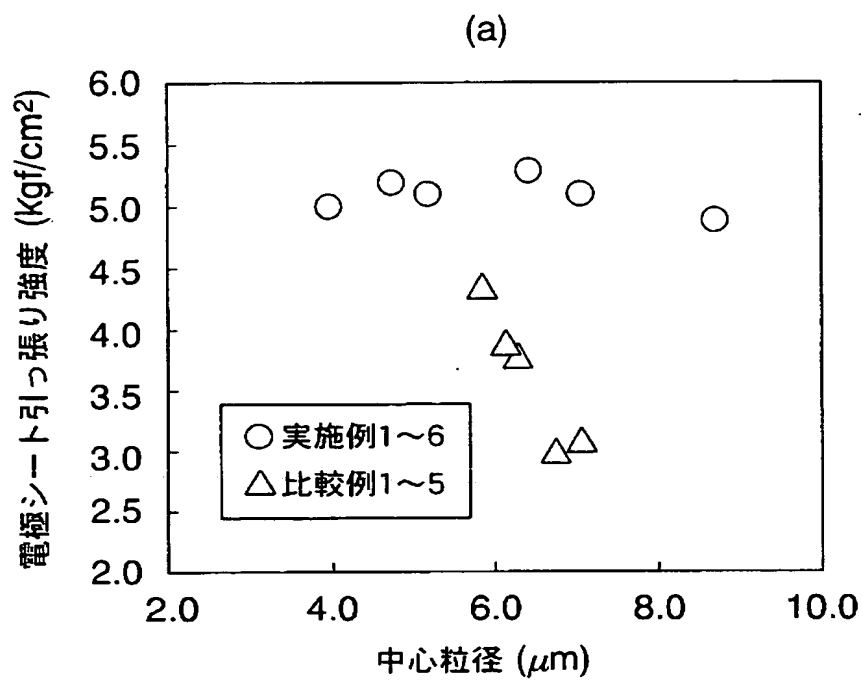
【図 4】



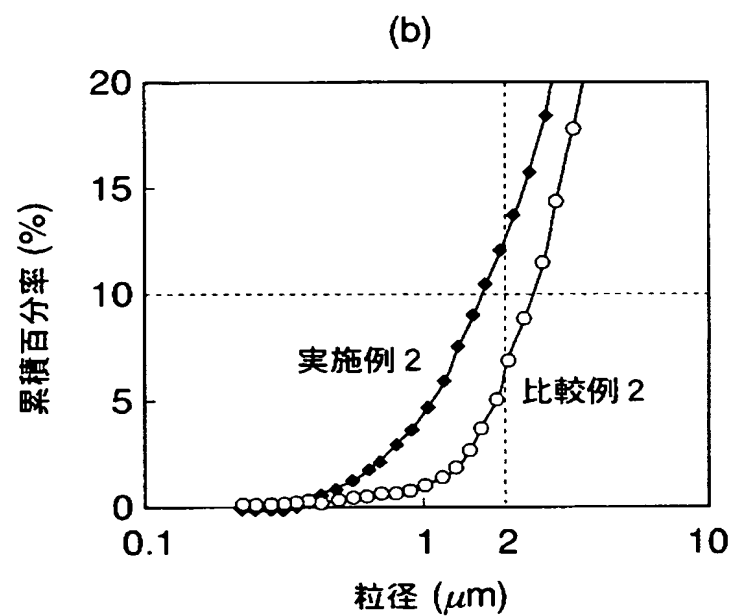
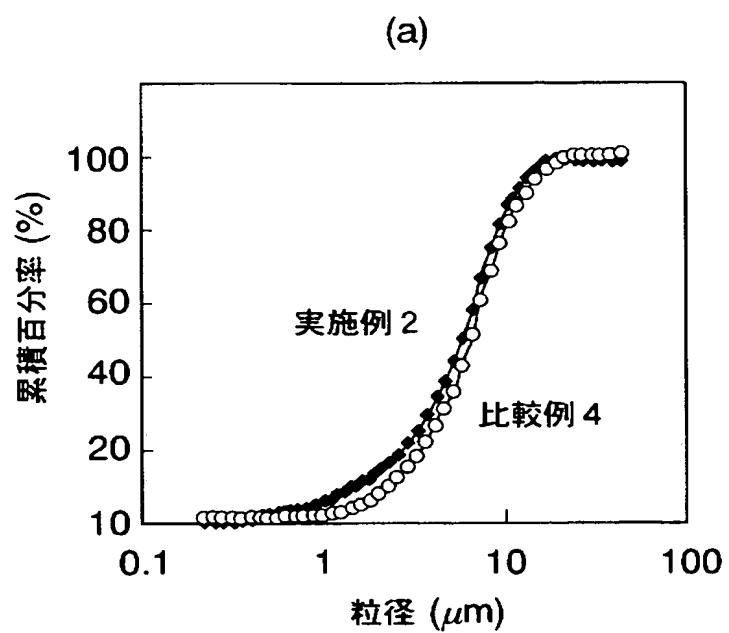
【図 5】



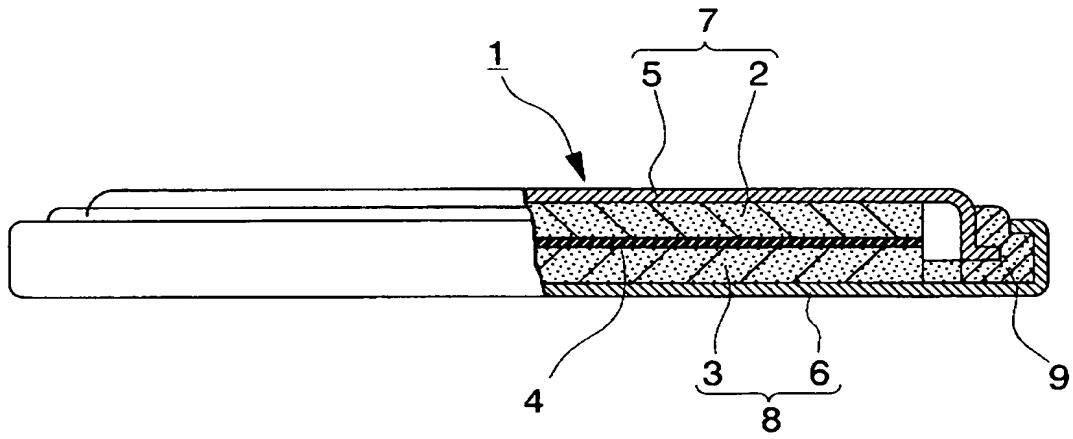
【図 6】



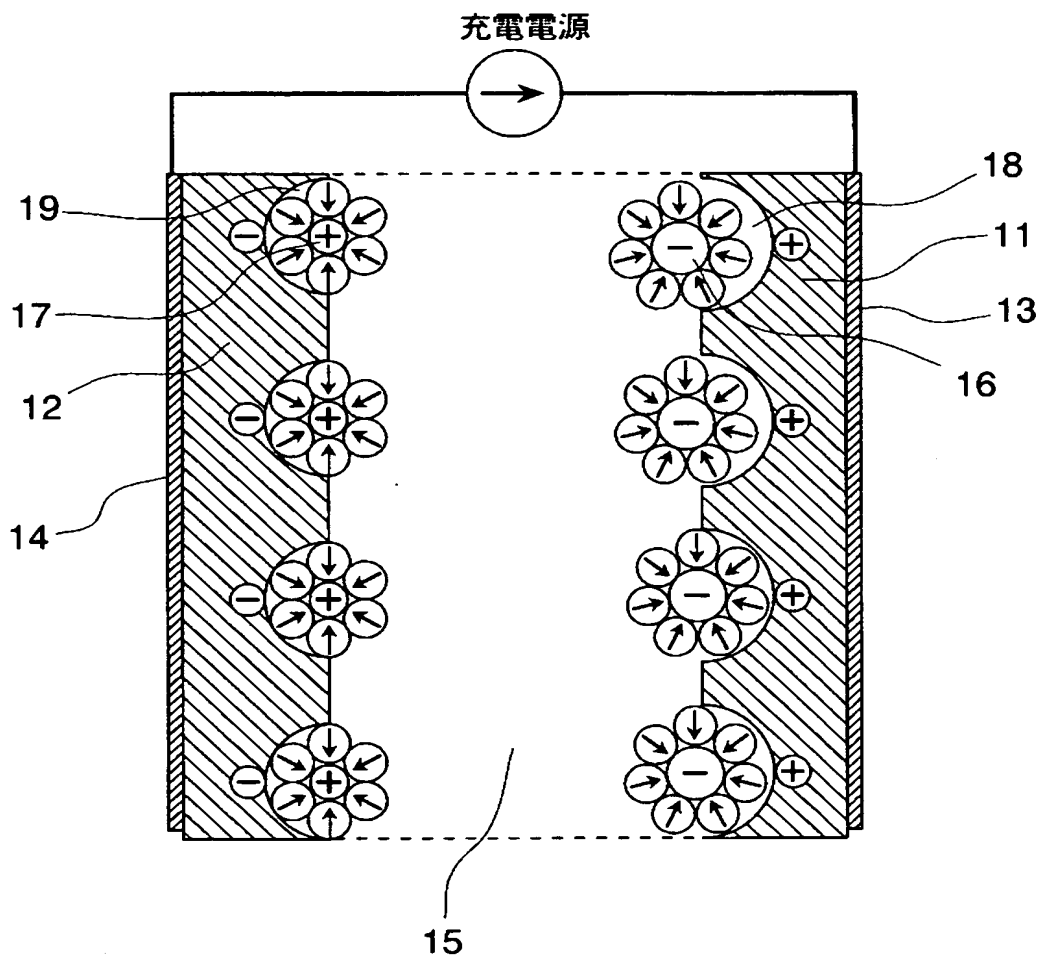
【図 7】



【図 8】



【図 9】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 良好な成形性を有すると共に、電極の高密度化や高容量化も図ることが可能な電気二重層コンデンサ用分極性電極およびこれを用いた電気二重層コンデンサを提供する。

【解決手段】 本発明に係る電気二重層コンデンサ用分極性電極（図 8 の 2、3）は、難黒鉛性原料（例えばフェノール樹脂）を水蒸気で賦活してなる活性炭からなり、前記活性炭は、レーザー回折法により観測された粒度分布の中心粒径が $4\ \mu\text{m}$ 以上 $8\ \mu\text{m}$ 以下、かつ、前記粒度分布において前記中心粒径よりも低粒度側に観測されるピークを少なくとも有することを特徴としている。また、前記活性炭は、累積百分率における $2\ \mu\text{m}$ 以下の粒子が 10 % 以上であることを特徴としている。本発明に係る電気二重層コンデンサ（図 8 の 1）は、上記構成とした分極性電極を用いる。

【選択図】 図 5

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 2 - 3 4 9 1 7 0
受付番号	5 0 2 0 1 8 1 7 0 1 9
書類名	特許願
担当官	第七担当上席 0 0 9 6
作成日	平成 1 4 年 1 2 月 2 日

< 認定情報・付加情報 >

【特許出願人】

【識別番号】	000005326
【住所又は居所】	東京都港区南青山二丁目 1 番 1 号
【氏名又は名称】	本田技研工業株式会社

【特許出願人】

【識別番号】	591001282
【住所又は居所】	愛知県名古屋市中区栄二丁目 3 番 1 号 名古屋広 小路ビルディング 1 3 階
【氏名又は名称】	大同メタル工業株式会社

【特許出願人】

【識別番号】	390001177
【住所又は居所】	岡山県備前市鶴海 4 3 4 2
【氏名又は名称】	クラレケミカル株式会社

【代理人】

申請人	
【識別番号】	100064908
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 2 3 番 3 号 O R ビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	志賀 正武

【選任した代理人】

【識別番号】	100108578
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 2 3 番 3 号 O R ビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	高橋 詔男

【選任した代理人】

【識別番号】	100101465
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 2 3 番 3 号 O R ビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	青山 正和

次頁有

認定・付加情報 (続き)

【選任した代理人】

【識別番号】 100094400

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場 3 丁目 2 3 番 3 号 ORビ
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 鈴木 三義

【選任した代理人】

【識別番号】 100107836

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場 3 丁目 2 3 番 3 号 ORビ
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 西 和哉

【選任した代理人】

【識別番号】 100108453

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場 3 丁目 2 3 番 3 号 ORビ
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 村山 靖彦

次頁無

特願 2 0 0 2 - 3 4 9 1 7 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 5 3 2 6]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目 1 番 1 号

氏 名

本田技研工業株式会社

特願 2 0 0 2 - 3 4 9 1 7 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[5 9 1 0 0 1 2 8 2]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 1 2 月 2 7 日

[変更理由]

新規登録

住 所

愛知県名古屋市北区猿投町 2 番地

氏 名

大同メタル工業株式会社

2. 変更年月日

2 0 0 2 年 9 月 1 7 日

[変更理由]

住所変更

住 所

愛知県名古屋市中区栄二丁目 3 番 1 号 名古屋広小路ビルヂン
グ 1 3 階

氏 名

大同メタル工業株式会社

特願 2 0 0 2 - 3 4 9 1 7 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[3 9 0 0 0 1 1 7 7]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 2 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

岡山県備前市鶴海 4 3 4 2

氏 名

クラレケミカル株式会社